

## BEST AVAILABLE COPY

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN



(11)Publication number : 2001-329257  
(43)Date of publication of application : 27.11.2001

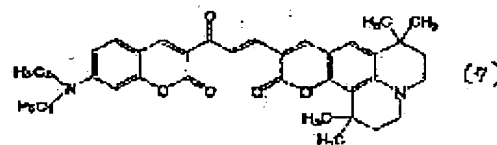
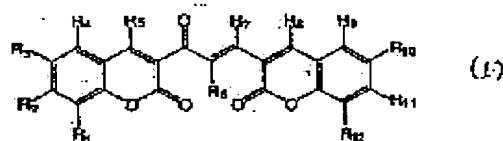
(51)Int.Cl. C09K 11/06  
H05B 33/12  
H05B 33/14

(21)Application number : 2000-153408 (71)Applicant : HAYASHIBARA BIOCHEM LAB INC  
TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB INC  
(22)Date of filing : 24.05.2000 (72)Inventor : SATSUKI MAKOTO  
TAKAHASHI YOSHIMI  
SASAKI CHIKA  
JINPO AKIRA  
SUGA SADAJI  
FUJIKAWA HISAYOSHI  
MIURA ATSUSHI  
TOKITO SEIJI  
TAGA YASUNORI

## (54) LUMINESCENT AGENT FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ITS USE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a luminescent agent for organic electroluminescent element having luminescence maximum in the red region or in the near red region and its use.  
SOLUTION: The luminescent agent for an organic electroluminescent element contains a coumarin derivative represented by formula (1) (wherein R1 to R12 are each H or a suitable substituent), e.g. by formula (7). An organic electroluminescent element containing the agent and an information display apparatus using the element are also provided.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]  
[Date of sending the examiner's decision of rejection]  
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]  
[Date of final disposal for application]  
[Patent number]  
[Date of registration]  
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]  
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]  
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office



(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-329257

(P 2 0 0 1 - 3 2 9 2 5 7 A)

(43) 公開日 平成13年11月27日 (2001. 11. 27)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マコード	(参考)
C09K 11/06	635	C09K 11/06	635	3K007
	655		655	
	660		660	
H05B 33/12		H05B 33/12	E	
33/14		33/14	B	
		審査請求 未請求 請求項の数15	OL	(全15頁)

(21) 出願番号 特願2000-153408 (P 2000-153408)

(22) 出願日 平成12年5月24日 (2000. 5. 24)

(71) 出願人 000155908

株式会社林原生物化学研究所

岡山県岡山市下石井1丁目2番3号

(71) 出願人 000003609

株式会社豊田中央研究所

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地  
地の1

(72) 発明者 梶月 真

岡山県岡山市下石井1丁目2番3号 株式  
会社林原生物化学研究所内

(74) 代理人 100108486

弁理士 須磨 光夫

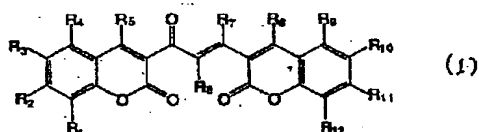
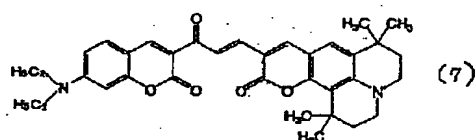
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子用発光剤とその用途

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 赤色域又は近赤色域に発光極大を有する有機電界発光素子用発光剤とその用途を提供する。

【解決手段】 一般式1、例えば式7のクマリン誘導体を含んでなる有機電界発光素子用発光剤及び有機電界発光素子、さらにその有機電界発光素子を用いる情報表示機器。

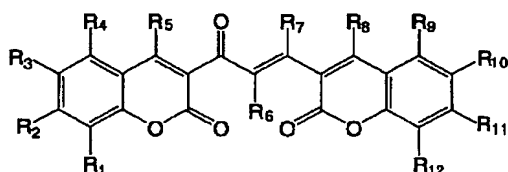
(R<sub>1</sub> ~ R<sub>12</sub> は水素又は適宜の置換基を表す。)

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式1で表されるクマリン誘導体を含んでなる有機電界発光素子用発光剤。

## 【化1】

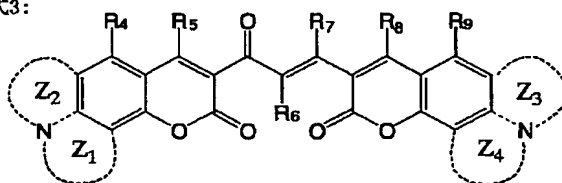
一般式1:



一般式1において、 $R_1$ 乃至 $R_{12}$ は水素原子又は適宜の置換基を表す。

【請求項2】 一般式1における $R_2$ 及び/又は $R_{11}$ が

一般式3:



一般式2において、 $R_{13}$ 及び $R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子か、あるいは、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基又はエーテル基を表し、それらの脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基及びエーテル基は置換基を有していてもよい。

【請求項3】 一般式1で表されるクマリン誘導体とともに、他の1又は複数の発光性化合物を含んでなる請求項1又は2に記載の有機電界発光素子用発光剤。

【請求項4】 他の発光性化合物がキノリノール金属錯体である請求項3に記載の有機電界発光素子用発光剤。

【請求項5】 赤色域又は近赤色域に発光極大を有する請求項1、2、3又は4に記載の有機電界発光素子用発光剤。

【請求項6】 一般式1で表されるクマリン誘導体とともに、青色域又は緑色域に発光極大を有する他の発光性化合物を1又は複数含んでなる請求項1、2、3、4又は5に記載の有機電界発光素子用発光剤。

【請求項7】 一般式1で表されるクマリン誘導体とともに、波長430乃至510nmに蛍光極大を有する他の発光性化合物を1又は複数含んでなる請求項1、2、3、4、5又は6に記載の有機電界発光素子用発光剤。

【請求項8】 請求項1乃至7のいずれかに記載の有機電界発光素子用発光剤を用いる有機電界発光素子。

【請求項9】 陽極、発光層及び陰極とともに、必要に応じて、正孔注入／輸送層及び/又は電子注入／輸送層を設けてなる構造を有し、その発光層が請求項1乃至7のいずれかに記載の有機電界発光素子用発光剤を含んでなる請求項8に記載の有機電界発光素子。

【請求項10】 赤色域又は近赤色域で発光する請求項8又は9に記載の有機電界発光素子。

【請求項11】 波長585nm以下の光を遮断するフ

一般式2で表される置換基であって、その $R_2$ 及び/又は $R_{11}$ において、一般式2における $R_2$ 及び/又は $R_{11}$ が、 $R_2$ が結合する炭素原子に隣接する炭素原子か、あるいは、 $R_{11}$ が結合する炭素原子に隣接する炭素原子と環状構造 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 及び/又は $Z_4$ を形成してなる、一般式3で表される請求項1に記載の有機電界発光素子用発光剤。

## 【化2】

一般式2:



## 【化3】

20 イルターを組合せることによって、発光を赤色光とした請求項8、9又は10に記載の有機電界発光素子。

【請求項12】 発光層に一般式1で表されるクマリン誘導体とともに、青色域又は緑色域に発光極大を有する他の発光性化合物を1又は複数含有せしめることによって、発光を白色光とした請求項8、9又は10に記載の有機電界発光素子。

【請求項13】 他の発光性化合物が波長430乃至510nmに蛍光極大を有する請求項12に記載の有機電界発光素子。

30 【請求項14】 請求項8乃至13のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いる表示パネル。

【請求項15】 請求項8乃至13のいずれかに記載の有機電界発光素子を用いる情報表示機器。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は有機電界発光素子（以下、「有機EL素子」と略記する。）において有用な発光剤とその用途に関するものである。

## 【0002】

40 【従来の技術】 情報表示の分野では、電界発光素子が次世代の表示素子として脚光を浴びている。現在、コンピューター端末機やテレビジョン受像機などの比較的大型の情報表示機器においては、主として、ブラウン管が用いられている。しかしながら、ブラウン管は体積、重量ともに大きく、動作電圧も高いので、民生用機器や携帯性を重視する小形の機器には適さない。小形機器には、もっと薄く、軽量の平板状であって、動作電圧が低く、消費電力の小さいものが必要とされている。現在では、液晶素子が動作電圧が低く、消費電力の比較的小さい点

50 が買われて、多方面で頻用されている。しかしながら、

液晶素子を用いる情報表示機器は、見る角度によってコントラストが変わるので、ある角度の範囲で読み取らないと明瞭な表示が得られないうえに、通常、バックライトを必要とするので、消費電力がそれほど小さくならないという問題がある。これらの問題を解決する表示素子として登場したのが有機EL素子である。

【0003】有機EL素子は、通常、陽極と陰極との間に発光性化合物を含有する発光層を介挿してなり、その陽極と陰極との間に直流電圧を印加して発光層に正孔及び電子をそれぞれ注入し、それらを互いに再結合させることによって発光性化合物の励起状態を作出し、その励起状態が基底状態に戻るときに放出される蛍光や燐光などの発光を利用する発光素子である。有機EL素子は、発光層を形成するに当って、ホスト化合物として適切な有機化合物を選択するとともに、そのホスト化合物に組合せるゲスト化合物（ドーパント）を変更することにより、発光の色調を適宜に変えることができる特徴がある。また、ホスト化合物とゲスト化合物の組合せによっては、発光の輝度と寿命を大幅に向上できる可能性がある。そもそも、有機EL素子は自ら発光する素子なので、これを用いる情報表示機器は視野角依存性がないうえに、バックライトが不要なので、消費電力を小さくできる利点があり、原理的に優れた発光素子であると言われている。

【0004】ところが、これまで、緑色域で発光する有機EL素子においては、ゲスト化合物の配合による発光効率や発光スペクトルの改善が報告されているけれども、赤色域で発光する有機EL素子においては、未だ効果的なゲスト化合物が見出されていないことから、色純度や輝度のみならず、耐久性においても信頼性においても、依然、不十分な状況にある。例えば、特開平10-60427号公報及び米国特許第4769292号明細書に開示された有機EL素子は、輝度が小さいうえに、発光が純粋な赤色ではないことから、フルカラーを実現するうえでなお問題があると言わざるを得ない。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】斯かる状況に鑑み、この発明の課題は赤色域又は近赤色域に発光極大を有する有機EL素子用発光剤とその用途を提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】これらの課題を解決すべく、本発明者が鋭意研究し、検索した結果、分子内にカルコン様構造（1, 3-ジピロニル-2-プロペン-1-オン）を有するクマリン誘導体（以下、単に「クマリン誘導体」と言うことがある。）は、目的とする可視領域に発光極大を有し、発光剤として有機EL素子に用いると、高輝度の赤色乃至橙色光を長時間に亘って発光することを見出した。この発明は、特定のクマリン誘導体の産業上有用な特性の発見に基づくものである。

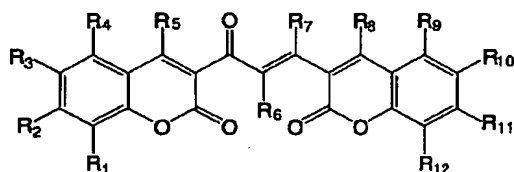
【0007】

【発明の実施の形態】この発明は前記の課題を分子内にカルコン様構造を有するクマリン誘導体、とりわけ、一般式1で表されるクマリン誘導体を含んでなる有機EL素子用発光剤を提供することによって解決するものである。

【0008】

【化4】

一般式1:

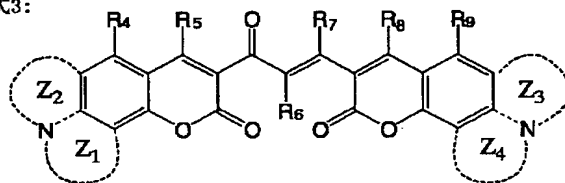


【0009】一般式1において、R<sub>1</sub>乃至R<sub>12</sub>は水素原子又は適宜の置換基を表す。個々の置換基としては、例えば、メチル基、エチル基、ビニル基、プロピル基、イソプロピル基、1-プロペニル基、2-プロペニル基、イソプロペニル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、2-ブテニル基、1, 3-ブタジエニル基、ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、2-ペンテニル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、5-メチルヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基などの脂肪族炭化水素基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘキシルメチル基、1-シクロヘキセニル基などの脂環式炭化水素基、フェニル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、o-クメニル基、m-クメニル基、p-クメニル基、キシリル基、メシチル基、ピフェニリル基、スチリル基、シンナモイル基、ナフチル基、アントニル基、フェナントリル基などの芳香族炭化水素基、フリル基、チエニル基、ピロリル基、ピロリジニル基、ピリジニル基、ピペリジニル基、ピペリジニル基、ピペラジニル基、モルホニル基、キノリル基、イソキノリル基などの複素環基、メトキシ基、エトキシ基、トリハロメトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基、フェノキシ基などのエーテル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基などのアルコキシカルボニル基、フルオロ基、クロロ基、ブロモ基、ヨード基などのハロゲン基、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基などのアミノ基、さらには、ヒドロキシ基、カルボキシ基、アシル基、スルホ基、スルフィノ基、シアノ基、ニトロ基などの電子吸引性基が挙げられる。これらの置換基においては、その水素原子の1又は複数が、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル

基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基などの短鎖長脂肪族炭化水素基、メトキシ基、トリハロメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基などのアルコキシ基、メトキシカルボニル基、トリフルオロメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基などのアルコキシカルボニル基、メチルスルホニル基、トリフルオロメチルスルホニル基、エチルスルホニル基などのアルキルスルホニル基、フルオロ基、クロロ基、プロモ基、ヨード基などのハロゲン基、さらには、ヒドロキシ基、カルボキシ基、スルホ基、スルフィノ基などによって置換されていてもよい。

【0010】このように、この発明でいうクマリン誘導体とは、分子内にカルコン様構造を有するクマリン誘導体、とりわけ、一般式1で表される基本骨格を有する化合物であって、かつ、その化合物が単独又は他の発光性化合物と組合せることによって有機EL素子用発光剤として用い得るものであるかぎり、一般式1における $R_1$ 乃至 $R_{12}$ が水素原子であるか適宜の置換基であるかは問

一般式3:



【0013】一般式2において、 $R_{13}$ 及び $R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子か、あるいは、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基又はエーテル基を表し、それらの脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基及びエーテル基は置換基を有していてもよい。一般式2における脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基及びエーテル基並びにそれらが有することある置換基は一般式1における $R_1$ 乃至 $R_{12}$ におけると同様のものが選択される。したがって、環状構造 $Z_1$ 乃至 $Z_4$ としては、環内に窒素原子を1以上含んでなる、置換基を1又は複数有することある単環式又は多環式の複素五員環若しくは複素六員環ということになる。なお、環状構造 $Z_1$ 乃至 $Z_4$ のいずれかが存在するときには、それぞれ、一般式1における $R_1$ 、 $R_3$ 、 $R_{10}$ 又は $R_{12}$ は、見掛け上、存在しないこととなる。

【0014】この発明で用いるクマリン誘導体の具体例としては、例えば、化学式1乃至17で表されるものが挙げられる。これらは、いずれも、赤色域又は近赤色域に蛍光極大などの発光極大を有し、しかも、ガラス状態において安定な薄膜を形成することから、単独又は他の発光性化合物と組合せることによって、有機EL素子用発光剤として極めて有利に用いることができる。

【0015】

【化7】

わない。この発明で用いる望ましい一群のクマリン誘導体としては、有機EL素子において組合せて用いるホスト化合物、正孔注入／輸送層用材、電子注入／輸送層用材などの種類や量にもよるけれども、例えば、一般式1における $R_2$ 及び／又は $R_{11}$ が一般式2で表される置換基であって、その $R_2$ 及び／又は $R_{11}$ において、一般式2における $R_{13}$ 及び／又は $R_{14}$ が、 $R_2$ が結合する炭素原子に隣接する炭素原子か、あるいは、 $R_{11}$ が結合する炭素原子に隣接する炭素原子と環状構造 $Z_1$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 及び／又は $Z_2$ を形成してなる、一般式3で表されるものが挙げられる。

【0011】

【化5】

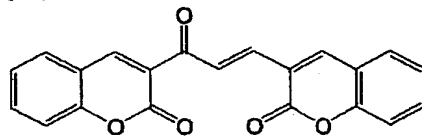
一般式2:



【0012】

【化6】

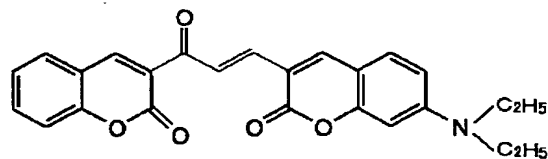
化学式1:



【0016】

【化8】

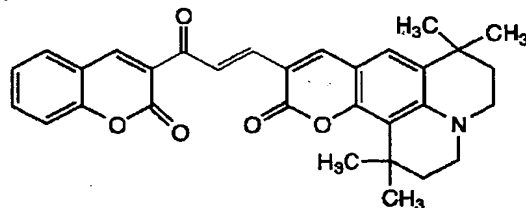
化学式2:



【0017】

【化9】

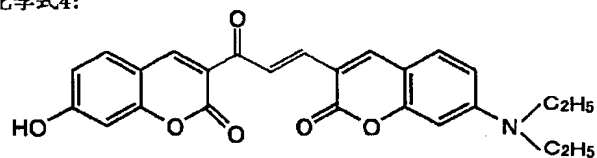
化学式3:



【0018】

【化10】

化学式4:



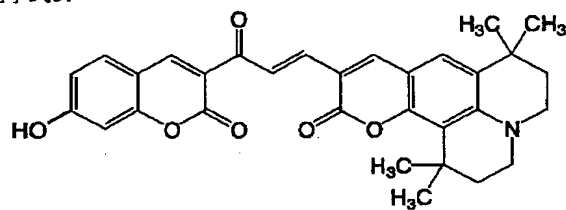
【0020】

【化12】

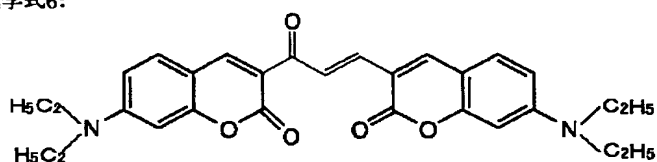
【0019】

【化11】

化学式5:



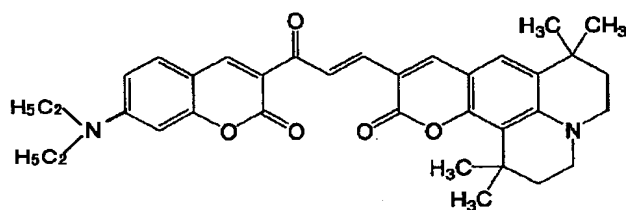
化学式6:



【0021】

20 【化13】

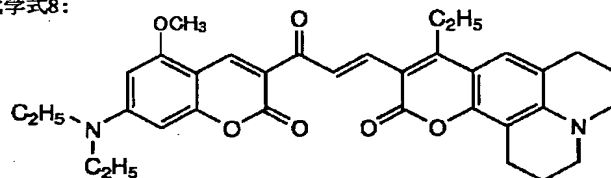
化学式7:



【0022】

【化14】

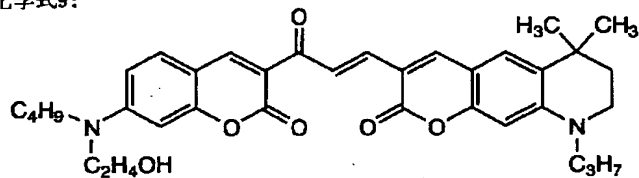
化学式8:



【0023】

【化15】

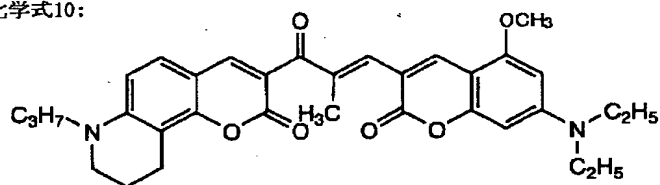
化学式9:



【0024】

【化16】

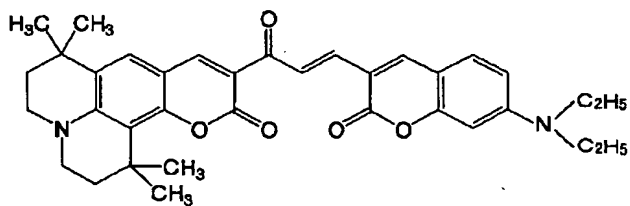
化学式10:



【0025】

【化17】

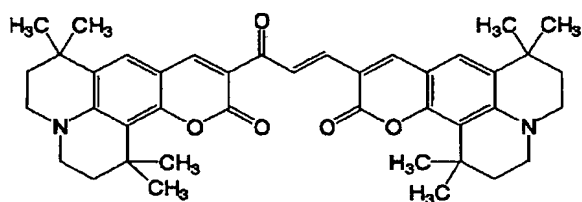
化学式11:



【0026】

【化18】

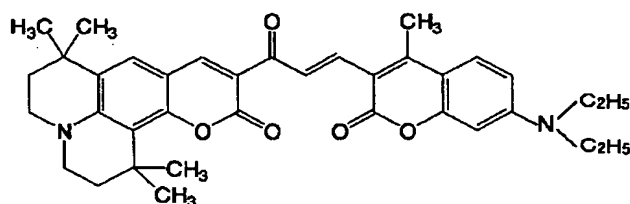
化学式12:



【0027】

【化19】

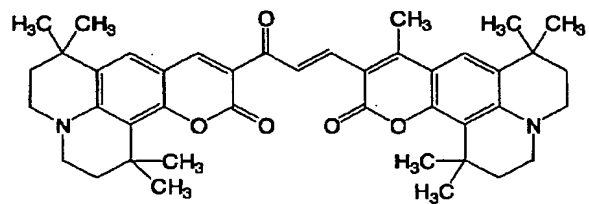
化学式13:



【0028】

【化20】

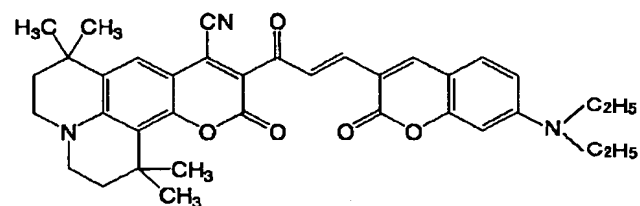
化学式14:



【0029】

【化21】

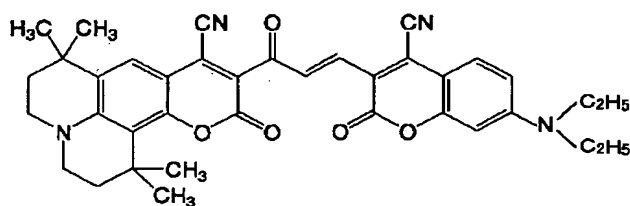
化学式15:



【0030】

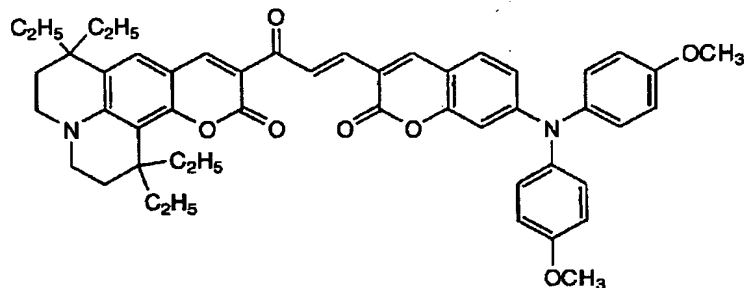
40 【化22】

化学式16:



【0031】

【化23】

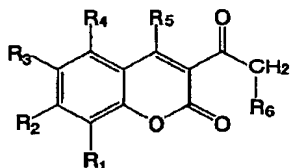
11  
化学式17:

【0032】この発明で用いるクマリン誘導体は諸種の方法で調製することができるが、経済性を重視するのであれば、例えば、一般式1に対応するR<sub>1</sub>乃至R<sub>4</sub>を有する一般式4で表される化合物と、一般式1に対応するR<sub>5</sub>乃至R<sub>12</sub>を有する一般式5で表される化合物とを反応させる工程を経由する方法が好適である。

【0033】

【化24】

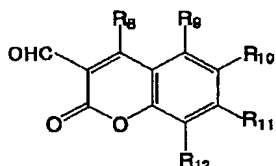
一般式4:



【0034】

【化25】

一般式5:



【0035】すなわち、反応容器に一般式4で表される化合物と一般式5で表される化合物をそれぞれ適量とり（通常等モル）、例えば、酢酸、無水酢酸、無水プロピオン酸、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、クレゾール、ベンジルアルコール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、アセトン、アセトニトリル、1, 4-ジオキサン、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、ホルムアミド、N-メチルホルムアミド、N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、水などの溶剤がこれらの混液に溶解し、ピペリジン、トリエチルアミン、ピリジン、N, N-ジメチルアニリンなどの塩基性化合物の存在下、加熱還流などにより加熱・攪拌しながら0.5乃至10時間反応させればよい。化学式1乃至化学式17で表されるクマリン誘導体は、いずれも、この方法により所望量を調製することができる。なお、一般式4及び一般式5で表される化合物は、いずれも、類縁化合物を調製するための汎用の方法に準じて得ることができる。また、一般式1におけるR<sub>1</sub>が置換基であるクマリ

12

ン誘導体は、一般に収率は低いものの、例えば、エム・アール・セリムらが『インディアン・ジャーナル・オブ・ヘテロサイクリック・ケミストリー』、第6巻、95乃至98頁（1996年）に報告している方法か、あるいは、その方法に準じて調製することができる。

【0036】斯くして得られるクマリン誘導体は、通常、使用に先立って、例えば、溶解、分液、傾斜、濾過、抽出、濃縮、薄層クロマトグラフィー、カラムクロマトグラフィー、ガスクロマトグラフィー、高速液体クロマトグラフィー、蒸留、昇華、結晶化などの類縁化合物を精製するための汎用の方法により精製され、必要に応じて、これらの方法は組合せて適用される。クマリン誘導体の種類や有機EL素子の用途にもよるけれども、この発明の有機EL素子用発光剤として用いるクマリン誘導体は、使用に先立って、例えば、蒸留、結晶化及び／又は昇華などの方法により高度に精製しておくのが望ましい。

【0037】一般式1で表されるクマリン誘導体は、既述のとおり、可視領域、詳細には、赤色域又は近赤色域に発光極大を有し、しかも、ガラス状態で安定な薄膜を形成することから、単独又は他の発光性化合物と組合せることによって、有機EL素子用発光剤として極めて有利に用いることができる。この発明でいう有機EL素子とは斯かる発光剤を用いる電界発光素子全般を意味し、とりわけ、正電圧を印加する陽極と、負電圧を印加する陰極と、正孔と電子を再結合させ発光を取り出す発光層と、必要に応じて、さらに、陽極から正孔を注入し輸送する正孔注入／輸送層と、陰極から電子を注入し輸送する電子注入／輸送層とを設けてなる単層型及び積層型の有機EL素子が重要な適用対象となる。

【0038】有機EL素子の動作は、周知のとおり、本質的に、電子及び正孔を電極から注入する過程と、電子及び正孔が固体中を移動する過程と、電子及び正孔が再結合し、一重項励起子又は三重項励起子を生成する過程と、その励起子が発光する過程とからなり、これらの過程は単層型及び積層型有機EL素子のいずれにおいても本質的に異なるところがない。しかしながら、単層型有機EL素子においては、発光性化合物の分子構造を変えることによってのみ上記4過程の特性を改善し得るのに対して、積層型有機EL素子においては、各過程において要求される機能を複数の材料に分担させるとともに、



それぞれの材料を独立して最適化できることから、一般的には、単層型に構成するよりも積層型に構成する方が所期の性能を達成し易い。

【0039】そこで、この発明の有機EL素子につき、積層型有機EL素子を例に挙げて説明すると、図1はこの発明による積層型有機EL素子の概略図であって、図中、1は基板であり、通常、ソーダガラス、バリウムシリケートガラス、アルミノシリケートガラスなどのガラスか、あるいは、プラスチック、セラミックなどの基板材料が用いられる。望ましい基板材料は透明なガラス及びプラスチックであり、シリコンなどの不透明なセラミックは、透明な電極と組合せて用いられる。

【0040】2は陽極であり、電氣的に低抵抗率であって、しかも、全可視領域に亘って光透過率の大きい金属又は電導性化合物を、通常、真空蒸着、スパッタリング、化学蒸着(CVD)、原子層エピタクシー(ALD)、塗布、浸漬などの方法により、基板1の一側に密着させて、陽極2における抵抗率が $1\text{ k}\Omega/\square$ 以下になるように、厚さ10乃至1,000nm、望ましくは、50乃至500nmに製膜することによって形成される。斯かる電導性材料としては、通常、金、白金、アルミニウム、ニッケルなどの金属若しくは合金、酸化錫、酸化インジウム、酸化錫とインジウムの混合系(以下、「ITO」と略記する。)などの金属酸化物か、あるいは、アニリン、チオフェン、ピロールなどを反復単位とする電導性オリゴマー若しくはポリマーが用いられる。このうち、ITOは、低抵抗率のものが容易に得られるうえに、酸を用いてエッチングすることにより、微細パターンを容易に形成できる特徴がある。

【0041】3は正孔注入/輸送層であり、通常、陽極2におけると同様の方法により、陽極2に密着させて、正孔注入/輸送層用材を厚さ1乃至1,000nmに製膜することによって形成される。正孔注入/輸送層用材としては、陽極2からの正孔注入と輸送を容易ならしめるべく、イオン化電位が小さく、かつ、例えば、 $10^4$ 乃至 $10^6\text{ V/cm}$ の電界下において、少なくとも、 $10^{-6}\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{秒}$ の正孔移動度を発揮するものが望ましい。個々の正孔注入/輸送層用材としては、有機EL素子において汎用される、例えば、芳香族第三級アミン、スチリルアミン、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミン置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体などが挙げられ、必要に応じて、これらは組合せて用いられる。

【0042】4は発光層であり、通常、陽極2におけると同様の方法により、正孔注入/輸送層3に密着させて、1又は複数の発光性化合物を単層若しくは2層に分

離した状態で全体として厚さ1乃至1,000nm、望ましくは、10乃至200nmに製膜することによって形成される。発光性化合物としては、一般式1で表されるクマリン誘導体を単独で用いるか、あるいは、ゲスト化合物としての一般式1で表されるクマリン誘導体に、ホスト化合物として、薄膜状態において高い発光量子効率を与える他の発光性化合物を1又は複数組合せて用いる。この発明のクマリン誘導体と組合せて用い得る個々の発光性化合物としては、例えば、オキサチアゾール、フェナントレン、トリアゾール、キナクリドン、ルブレン若しくはそれらの誘導体やキノリノール金属錯体、ジスチリルアリーレン誘導体若しくはそのスピロ化合物、ジフェニルアントラセン誘導体などが挙げられる。このうち、ジスチリルアリーレン誘導体及びそのスピロ化合物並びにジフェニルアントラセン誘導体は、通常、波長430乃至510nmの青色域又は緑色域に蛍光極大などの発光極大を有し、その発光波長はこの発明によるクマリン誘導体の吸収極大波長(通常470乃至510nm)と実質的に重なり合う。したがって、青色域又は緑色域に発光極大を有するこれらの発光性化合物は、この発明のクマリン誘導体と組合せて発光層4に用いると、前者の励起エネルギーがこの発明のクマリン誘導体に効率的に移動するので、赤色乃至橙色光又は後述する白色光を発光する有機EL素子において極めて有効なホスト化合物として機能することとなる。

【0043】赤色乃至橙色光を発光させるうえで最も望ましいホスト化合物はキノリノール金属錯体であって、この発明でいうキノリノール金属錯体とは、キノリノール類を配位子とし、有機EL素子においてホスト化合物として用い得る金属錯体全般を意味する。好ましいキノリノール金属錯体としては、8-キノリノール類を配位子とする金属錯体であって、例えば、アルミニウム、亜鉛、ベリリウム、マグネシウム、インジウム、リチウム、カリウム、カルシウムなどの周期律表における第1族、第2族、第12族又は第13族の金属かそれらの酸化物を中心原子とするものが挙げられる。なお、配位子としての8-キノリノール類は、ヒドロキシ基が結合している8位以外の部位に、例えば、フルオロ基、クロロ基、ブロモ基などのハロゲン基、メチル基、トリフルオロメチル基、エチル基、プロピル基などの短鎖長アルキル基若しくはハロアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基などのアルコキシ基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基などのアルコキシカルボニル基、さらには、シアノ基、ニトロ基、スルホニル基、ヒドロキシ基などの置換基を1又は複数有していてもよい。

【0044】個々のキノリノール金属錯体としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)ア

ルミニウム、トリス（４－メトキシ－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（４，５－ジメチル－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（４，６－ジメチル－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（５－クロロ－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（５－プロモ－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（５，７－ジクロロ－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（５－シアノ－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（５－スルホニル－８－キノリノラート）アルミニウム、トリス（５－プロピル－８－キノリノラート）アルミニウム、ビス（２－メチル－８－キノリノラート）アルミニウムオキシドなどのアルミニウム錯体、ビス（８－キノリノラート）亜鉛、ビス（２－メチル－８－キノリノラート）亜鉛、ビス（２，４－ジメチル－８－キノリノラート）亜鉛、ビス（２－メチル－５－クロロ－８－キノリノラート）亜鉛、ビス（２－メチル－５－シアノ－キノリノラート）亜鉛、ビス（３，４－ジメチル－８－キノリノラート）亜鉛、ビス（４，６－ジメチル－８－キノリノラート）亜鉛、ビス（５－クロロ－８－キノリノラート）亜鉛、ビス（５，７－ジクロロ－８－キノリノラート）亜鉛などの亜鉛錯体、ビス（８－キノリノラート）ベリリウム、ビス（２－メチル－８－キノリノラート）ベリリウム、ビス（２，４－ジメチル－８－キノリノラート）ベリリウム、ビス（２－メチル－５－クロロ－８－キノリノラート）ベリリウム、ビス（２－メチル－５－シアノ－キノリノラート）ベリリウム、ビス（３，４－ジメチル－８－キノリノラート）ベリリウム、ビス（４，６－ジメチル－８－キノリノラート）ベリリウム、ビス（５－クロロ－８－キノリノラート）ベリリウムなどのベリリウム錯体、ビス（８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（２－メチル－８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（２，４－ジメチル－８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（２－メチル－５－シアノ－８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（３，４－ジメチル－８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（４，６－ジメチル－８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（５－クロロ－８－キノリノラート）マグネシウム、ビス（５，７－ジクロロ－８－キノリノラート）マグネシウムなどのマグネシウム錯体、トリス（８－キノリノラート）インジウムなどのインジウム錯体、トリス（５－クロロ－８－キノリノラート）ガリウムなどのガリウム錯体、ビス（５－クロロ－８－キノリノラート）カルシウムなどのカルシウム錯体などが挙げられるが、これらは単なる例示であって、この発明でいうキノリノール金属錯体は決してこれらに限定されてはならない。なお、キノリノール金属錯体が分子内に２以上の配位子を有する場合、それらの配位子は互いに同じものであっても異なるものであってもよい。なお、一般式１で表されるクマリン誘導体をゲスト化合物として用いる場合には、組合せるホス

ト化合物の種類にもよるけれども、通常、ホスト化合物に対して０．０１モル％以上、望ましくは、０．１乃至１０モル％の範囲で配合する。

【００４５】さて、５は電子注入／輸送層であり、通常、陽極２におけると同様の方法により、発光層４に密着させて、電子親和力の大きい有機化合物であって、赤色域又は近赤色域の光を吸収しない、例えば、発光層４におけると同様の化合物か、あるいは、ベンゾキノン、アントラキノン、フルオレノンなどの環状ケトン若しくはそれらの誘導体、シラザン誘導体、さらには、アニリン、チオフェン、ピロールなどを反復単位とする電導性オリゴマー若しくはポリマーの１又は複数を厚さ１０乃至５００ｎｍに製膜することによって形成される。複数の電子注入／輸送層用材を用いる場合には、その複数の電子注入／輸送層用材を均一に混合して１層に形成しても、混合することなく、電子注入／輸送層用材ごとに隣接する複数の層に形成してもよい。

【００４６】６は陰極であり、通常、電子注入／輸送層５に密着させて、電子注入／輸送層５において用いられる化合物よりも仕事関数の低い（通常、６ｅＶ以下）、例えば、リチウム、マグネシウム、カルシウム、ナトリウム、銀、銅、アルミニウム、インジウムなどの金属若しくは金属酸化物又は電導性化合物を単独又は組合せて蒸着するか、あるいは、銅フタロシアニンなどによる緩衝層とＩＴＯ電極とを組合せて陰極とする。陰極６の厚みについては特に制限がなく、電導性、製造コスト、素子全体の厚み、光透過性などを勘案しながら、通常、抵抗率が１ｋΩ／□以下になるように、１０ｎｍ以上、望ましくは、５０乃至５００ｎｍに設定される。なお、陰極６と電子注入／輸送層５との間に、必要に応じて、密着性を高めるために、例えば、芳香族ジアミン化合物、キナクリドン化合物、ナフタセン化合物、有機シリコン化合物、有機燐化合物などを含んでなる界面層や、電子注入効率を改善すべく、アルカリ金属又はアルカリ土類金属による薄膜を設けてもよい。

【００４７】このように、この発明の有機ＥＬ素子は、基板１上に、陽極２、発光層４及び陰極６、さらには、必要に応じて、正孔注入／輸送層３及び電子注入／輸送層５を隣接する層と密着させながら一体に形成することによって作製することができる。各層を形成するに当たっては、有機化合物の酸化や分解、さらには、酸素や水分の吸着などを最少限に抑えるべく、高真空中、詳細には、 $10^{-5}$  Torr 以下で一貫作業するのが望ましい。また、発光層４を形成するに当たっては、あらかじめ、ホスト化合物とこの発明のクマリン誘導体とを所定の割合で混合しておくか、あるいは、真空蒸着における両者の加熱速度を互いに独立して制御することによって、発光層４に蒸着させる両者の配合比を調節する。斯くして構築した有機ＥＬ素子は、使用環境における劣化を最少限に抑えるべく、素子の一部又は全体を、例えば、不活性

ガス雰囲気下で封止ガラスや金属キャップにより封止するか、あるいは、紫外線硬化樹脂などによる保護層で覆うのが望ましい。

【0048】この発明による有機EL素子の使用方法について説明すると、この発明の有機EL素子は、用途に応じて、比較的高電圧のパルス性電圧を間欠的に印加するか、あるいは、比較的低電圧の非パルス性電圧（通常、2乃至50V）を連続的に印加して駆動する。この発明の有機EL素子は、陽極の電位が陰極より高いときのみ発光する。したがって、この発明の有機EL素子に印加する電圧は直流であっても交流であってもよく、また、印加する電圧の波形、周期も適宜のものとすればよい。交流を印加すると、この発明の有機EL素子は、原理上、印加する交流の波形及び周期に応じて輝度が増減したり点滅を繰り返す。図1に示す有機EL素子の場合、陽極2と陰極6との間に電圧を印加すると、陽極2から注入された正孔が正孔注入／輸送層3を経て発光層4に、また、陰極6から注入された電子が電子注入／輸送層5を経て発光層4にそれぞれ到達する。その結果、発光層4において、正孔と電子の再結合が生じ、それにより生じた励起状態のクマリン誘導体から目的とする赤色乃至橙色光が陽極2及び基板1を透過して放出されることとなる。この発明の有機EL素子は、クマリン誘導体の発光特性や組合せて用いるホスト化合物の種類にもよるけれども、通常、波長550nm以上、詳細には、550乃至650nmの赤色域又は近赤色域に発光極大を有する。また、その発光は、xy色度座標において、通常、xが0.4乃至0.7の範囲に、また、yが0.3乃至0.6の範囲にある。

【0049】さらに、既述のとおり、この発明で用いるクマリン誘導体は有機EL素子において赤色乃至橙色光を発光することから、発光層4において、その補色である青色乃至緑色光を発光し得る青色域又は緑色域に発光極大を有する前述のごとき他の発光性化合物を組合せて用いることによって、有機EL素子の発光を白色光とすることができる。具体的には、発光層4を形成するに当たって、白色光の色純度を指標に、例えば、膜厚及び／又は発光性化合物の含量を調整しつつ、クマリン誘導体を含有する層と青色乃至緑色光を発光する発光性化合物を含有する層とを積層するか、あるいは、配合比を適宜調整した両者の混合物による単層の発光層4を構成する。組合せる発光性化合物の種類にもよるけれども、斯くして得られる白色光はxy色度座標において、通常、xが0.25乃至0.4の範囲に、また、yが0.25乃至0.4の範囲にある。

【0050】この発明の有機EL素子は、発光効率及び耐久性に優れているので、発光体や情報を視覚的に表示する情報表示機器において多種多様の用途を有することとなる。この発明の有機EL素子を光源とする発光体は、消費電力が小さいうえに、軽量のパネル状に構成す

ることができるので、一般照明の光源に加えて、例えば、液晶素子、複写装置、印字装置、電子写真装置、コンピュータ及びその応用機器、工業制御機器、電子計測装置、分析装置、計器一般、通信機器、医療用電子計測機器、民生用及び業務用の電子機器一般、さらには、車輛、船舶、航空機、宇宙船などに搭載する機器一般、航空機の管制機器、インテリア、看板、標識などにおける省エネルギーにして省スペースな光源及び／又は情報表示素子として極めて有用である。この発明の有機EL素子は、必要に応じて、波長585nm以下の光を遮断するフィルターと組合せ、通常、用途に応じたパネル状に形成して用いられる。この発明の有機EL素子を照明機器や、例えば、車輛、船舶、航空機、宇宙船などの計器盤、コンピュータ端末機、テレビジョン受像機、録画機、ゲーム機、時計、電話機、通信機、カーナビゲーション装置、オシロスコープ、レーダー、ソナー、看板、標識などの情報表示機器に用いる場合には、赤色乃至橙色光又は白色光を発光するこの発明の有機EL素子単独か、あるいは青色域又は緑色域を発光するための有機EL素子と組合せつつ、必要に応じて、汎用の単純マトリックス方式やアクティブマトリックス方式を適用して駆動する。

【0051】以下、この発明の実施の形態につき、実施例に基づいて説明する。

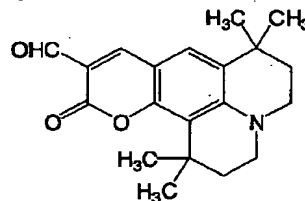
【0052】

【実施例1】〈有機EL素子用発光剤〉反応容器にクロロホルムを適量とり、化学式18で表される化合物5.1g及び化学式19で表される化合物6.0gを加え、加熱溶解した後、ピペリジン4.5ml及び酢酸2.6mlを加え、6時間加熱還流した。反応混合物を濃縮した後、エタノールを加え、析出した粗結晶をクロロホルム／エタノール混液を用いて再結晶したところ、化学式7で表されるクマリン誘導体の赤色結晶が3.4g得られた。

【0053】

【化26】

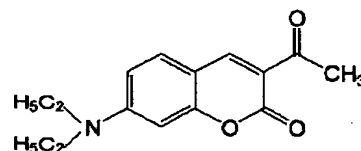
化学式18:



【0054】

【化27】

化学式19:



【0055】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は263℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長505 nm及び613 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0056】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

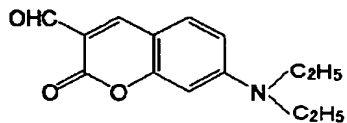
【0057】

【実施例2】〈有機EL素子用発光剤〉反応容器にクロロホルムを適量とり、化学式20で表される化合物1.9 g及び化学式21で表される化合物4.0 gを加え、加熱溶解した後、ピペリジン2.4 ml及び酢酸1.4 mlを加え、5時間加熱還流した。反応混合物を濃縮した後、エタノールを加え、析出した粗結晶をクロロホルム／エタノール混液を用いて再結晶したところ、化学式11で表されるクマリン誘導体の赤色結晶が2.0 g得られた。

【0058】

【化28】

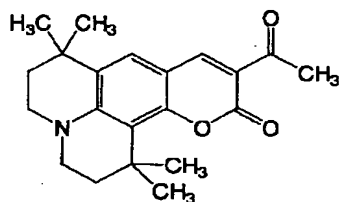
化学式20:



【0059】

【化29】

化学式21:



【0060】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は285℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長503 nm及び568 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0061】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

【0062】

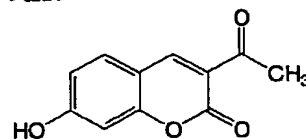
【実施例3】〈有機EL素子用発光剤〉反応容器にクロロホルムを適量とり、化学式18で表される化合物2.0 g及び化学式22で表される化合物1.8 gを加え、加熱溶解した後、ピペリジン1.8 ml及び酢酸1.1 mlを加え、4時間加熱還流した。反応混合物を濃縮した後、エタノールを加え、析出した粗結晶をクロロホルム／エタノール混液を用いて再結晶したところ、化学式

5で表されるクマリン誘導体の茶紅色結晶が1.2 g得られた。

【0063】

【化30】

化学式22:



【0064】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は250乃至255℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長501 nm及び649 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0065】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

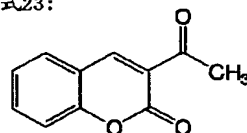
【0066】

20 【実施例4】〈有機EL素子用発光剤〉反応容器にクロロホルムを適量とり、化学式20で表される化合物2.0 g及び化学式23で表される化合物2.3 gを加え、加熱溶解した後、ピペリジン2.5 ml及び酢酸1.4 mlを加え、4時間加熱還流した。反応混合物を濃縮した後、エタノールを加え、析出した粗結晶をクロロホルム／エタノール混液を用いて再結晶したところ、化学式2で表されるクマリン誘導体の輝緑紅色結晶が1.3 g得られた。

【0067】

30 【化31】

化学式23:



【0068】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は240乃至245℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長479 nm及び623 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0069】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

【0070】

【実施例5】〈有機EL素子用発光剤〉化学式19で表される化合物に代えて化学式23で表される化合物を用いた以外は実施例1におけると同様に反応させ、精製したところ、化学式3で表されるクマリン誘導体の輝紅色結晶が得られた。

【0071】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は235℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長505 nm及び675 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0072】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

【0073】

【実施例6】〈有機EL素子用発光剤〉化学式21で表される化合物に代えて化学式22で表される化合物を用いた以外は実施例2におけると同様に反応させ、精製したところ、化学式4で表されるクマリン誘導体の明橙色結晶が得られた。

【0074】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は255℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長474 nm及び604 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0075】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

【0076】

【実施例7】〈有機EL素子用発光剤〉化学式18で表される化合物に代えて化学式20で表される化合物を用いた以外は実施例1におけると同様に反応させ、精製したところ、化学式6で表されるクマリン誘導体の輝赤紫色結晶が得られた。

【0077】常法にしたがって測定したところ、本例のクマリン誘導体の融点は278℃であった。さらに、常法にしたがって可視吸収スペクトル（メタノール溶液）及び蛍光スペクトル（塩化メチレン溶液）を測定したところ、本例のクマリン誘導体は、それぞれ、波長490 nm及び566 nmに吸収極大及び蛍光極大を示した。

【0078】発光特性に優れた本例のクマリン誘導体は、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。

【0079】なお、この発明で用いるクマリン誘導体は、構造によって仕込条件や収率に若干の違いはあるものの、例えば、化学式1乃至化学式17で表されるものは、いずれも、実施例1乃至実施例7の方法によるか、あるいは、それらの方法に準じて調製することができる。

【0080】

【実施例8】〈有機EL素子〉この発明の有機EL素子用発光剤を用い、図1に示す構造を有する積層型有機EL素子を作製した。

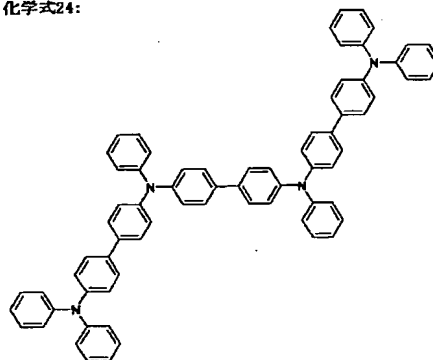
【0081】王水蒸気によりパターン化した陽極2としての厚さ100 nmの透明ITO電極を有するガラス製の基板1を洗剤、純水、アセトン及びエタノールを用いて超音波洗浄し、乾燥し、紫外線オゾンにより処理した

後、真空蒸着装置に固定し、 $10^{-7}$  Torrまで減圧した。次いで、ガラス基板1におけるITO電極を有する面に対して化学式24で表されるトリフェニルアミンの四量体を厚さ60 nmになるまで蒸着して正孔注入／輸送層2を形成した。その後、膜厚センサーでモニターしながら、発光剤として、表1に示すこの発明によるクマリン誘導体のいずれかとトリス（8-キノリノラート）アルミニウムを重量比1：100で厚さ20 nmまで共蒸着して発光層4を形成し、さらに、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを厚さ40 nmまで蒸着して電子注入／輸送層5を形成した後、弗化リチウム及びアルミニウムをこの順序でそれぞれ厚さ0.5 nm及び160 nmになるまで蒸着して陰極6を形成した。その後、窒素雰囲気下で、素子全体をガラス板及び紫外線硬化樹脂を用いて封止して4種類の有機EL素子を得た。

【0082】

【化32】

化学式24:

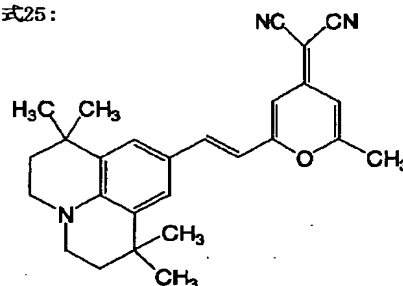


【0083】斯くして得られた有機EL素子につき、常法にしたがって、発光スペクトルを測定するとともに、発光輝度と注入電流密度若しくは印加電圧との関係を調べ、発光量子効率(%)を計算した。併せて、初期発光輝度を300 cd/m<sup>2</sup>に設定したときの発光輝度と駆動時間との関係を調べ、寿命（初期発光輝度が半減する駆動時間）を計算した。別途、クマリン誘導体に代えて化学式25で表される化合物を用いる系を設け、これを上記と同様に処置して対照とした。結果を表1に示す。

【0084】

【化33】

化学式25:



【0085】

【表1】

クマリン誘導体	発光極大波長 (nm)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> ) <sup>*1</sup>	発光量子効率 (%) <sup>*1</sup>	寿命 (時間) <sup>*1</sup>	備 考
化学式 6	572	523.3	1.6	3900	本発明
化学式 7	587	491.9	1.7	3030	本発明
化学式 11	557	371.2	1.1	1100	本発明
化学式 12	592	422.9	1.6	3300	本発明
化学式 25	606	119.0	0.53	680	対 照

\*1 は、電流密度 11mA/cm<sup>2</sup> で駆動した場合の測定値を示す。

\*2 は、初期発光輝度 300cd/m<sup>2</sup> で定電流駆動した場合の半減期を示す。

【0086】表1の結果に見られるとおり、本例の有機EL素子は、直流電圧を印加すると、波長560乃至600nmの赤色域又は近赤色域に発光極大を有する赤色乃至橙色の発光をもたらした。発光スペクトルによると、いずれの発光も、半値幅が90乃至100nmと狭く、良好な色純度を有するとともに、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムからの望ましくない短波長側の発光を実質的に伴っていなかった。発光は2.5V前後から確認され、12乃至15Vで30,000乃至60,000cd/m<sup>2</sup>に達した。本例の有機EL素子を11mA/cm<sup>2</sup>で定電流駆動したときの発光輝度は約370乃至520cd/m<sup>2</sup>となり、そのときの発光量子効率は1.1乃至1.7%と高効率であった。発光は安定して持続し、発光開始から1,000時間経過した時点においても部分的暗黒部(ダークスポット)は観察されなかった。実用的な発光輝度である300cd/m<sup>2</sup>で定電流駆動したときの半減期は、いずれも、1,000時間以上であった。化学式6、化学式7及び化学式12で表されるクマリン化合物を用いた有機EL素子の寿命は約3,000乃至4,000時間と、特に長かった。ちなみに、対照の有機EL素子は、表1の結果に見られるとおり、本例の有機EL素子と比較して、赤味がやや勝った発光を示したものの、発光量子効率及び寿命の点で有意に劣っていた。

【0087】別途、化学式6、化学式7及び化学式12で表されるクマリン誘導体を用いた有機EL素子につき、11mA/cm<sup>2</sup>で定電流駆動したときの発光スペクトルをそれぞれ測定し、それらの発光スペクトルから発光のxy色度座標を決定した。さらに、それらの有機EL素子のガラス基板に波長585nm以下の光を遮断するフィルターを取り付け付けた状態で発光スペクトルを同様にして測定し、発光のxy色度座標を決定した。併行して、対照の有機EL素子についても、発光の色度座標を決定した。結果を表2に示す。

【0088】

【表2】

クマリン誘導体	フィルター無し		フィルター有り		備 考
	色度座標(x,y)	輝度(cd/m <sup>2</sup> ) <sup>*1</sup>	色度座標(x,y)	輝度(cd/m <sup>2</sup> ) <sup>*1</sup>	
化学式 6	(0.458,0.508)	523.3	(0.619,0.376)	220.7	本発明
化学式 7	(0.464,0.484)	491.9	(0.629,0.367)	196.0	本発明
化学式 12	(0.509,0.463)	422.9	(0.586,0.361)	168.6	本発明
化学式 25	(0.629,0.365)	119.0	—	—	対 照

\*1 は、電流密度 11mA/cm<sup>2</sup> で駆動した場合の測定値を示す。

【0089】表2の結果に見られるとおり、フィルターを取り付けない本例の有機EL素子は橙色に近い赤色光

を発光した。しかしながら、その発光は、波長585nm以下の光を遮断するフィルターを用いることによって、米国における全国テレビ方式委員会(NTSC)の規格による赤色光の色度座標(x=0.67、y=0.33)に近接するものとなるうえに、輝度も200cd/m<sup>2</sup>程度と高かった。一方、対照の有機EL素子は、発光の色純度がやや良好であるため、フィルターを必要としないものの、発光輝度が119cd/m<sup>2</sup>と小さく、フィルターを併用した本例の有機EL素子におよばなかった。これらの試験結果は、クマリン誘導体を含んでなるこの発明の発光剤を用いることによって、実用に耐え得る高効率にして長寿命の赤色有機EL素子が実現できることを物語っている。

【0090】

【実施例9】〈表示パネル〉図2に概略的に示すのは、この発明の有機EL素子を主体とする単純マトリクス方式の表示パネルの一例(水平方向に20電極列、垂直方向に30電極列)であり、斯かる表示パネルは次のようにして作製することができる。

【0091】すなわち、先ず、実施例8の方法に準じてガラス基板10の一侧にITO透明電極による陽極14を形成した後、湿式エッチング法により陽極14をストライプ状に加工する。次いで、実施例8の方法に準じて正孔注入/輸送層16、発光層18を順次形成し、メカニカルマスクを用いて陰極20をストライプ状に形成した後、ガラス板(図示しない)と紫外線硬化樹脂により有機EL素子を封止する。なお、本例の表示パネルにおいては、使用時の温度上昇を抑えるべく、必要に応じて、陰極20の背面側に放熱板や冷却ファンを取り付けてもよい。

【0092】

【実施例10】〈情報表示機器〉図3に示すのは、実施例9の方法により作製した表示パネルを用いる情報表示機器の一例である。図3において、30は出力電圧4.5Vの直流電源であり、その出力端には二つの昇圧回路32、34が接続されている。昇圧回路32は5乃至12Vの範囲の直流電圧を供給することができ、その出力端はドライバ回路36に接続されている。もう一方の昇圧回路34は、5Vの定電圧をマイクロコンピュータ38に供給するためのものである。

【0093】マイクロコンピュータ38は、外部と信号をやりとりするI/Oインターフェース38aと、プログラムなどを記憶するROM38bと、各種のデータを記憶するRAM38cと、各種の演算を実行するCPU38dを含んでなる。マイクロコンピュータ38には、マイクロコンピュータ38に8MHzのクロック信号を供給するクロック発生回路40と、二つの発振回路42、44がそれぞれ接続されており、その二つの発振回路42、44は、マイクロコンピュータ38に、それぞれ、表示速度を制御する5乃至50Hzの信号

と、走査周波数を制御する 0.2 乃至 2 kHz の信号を供給するためのものである。

【0094】48はこの発明の有機EL素子を主体とする表示パネルであり、ドライバ回路36、46を介してマイクロコンピュータ38に接続されている。ドライバ回路36は、昇圧回路32からの直流電圧が表示パネルに印加されるのを制御する回路であって、表示パネル48における垂直方向の電極列に個別に接続される複数のトランジスタを含んでなる。したがって、このドライバ回路36におけるトランジスタのいずれかがオンすると、そのトランジスタに接続されている垂直方向の電極列に昇圧回路32からの電圧が印加されることとなる。一方、ドライバ回路46は、表示パネル48の水平方向の電極列に個別に接続される複数のトランジスタを含んでなり、ドライバ回路46におけるトランジスタのいずれかがオンすると、そのトランジスタに接続されている水平方向の電極列が接地されることとなる。

【0095】本例の情報表示機器は斯く構成されているので、マイクロコンピュータ38の指示にしたがってドライバ回路36、46におけるトランジスタがオンすると、表示パネル48の垂直方向及び水平方向における対応する電極列間に所定の電圧が印加され、その交点に位置する有機EL素子が発光することとなる。したがって、例えば、ドライバ回路46を適宜制御することによって水平方向の電極列を1列選択し、その電極列を接地しつつ、ドライバ回路36を適宜制御することによって垂直方向の電極列に接続されたトランジスタを順次オンすれば、その選択された水平方向の電極列全体が水平方向に走査され、所与の画素が表示されることとなる。斯かる走査を垂直方向に順次繰返すことによって、1画面全体を表示できる。なお、本例におけるドライバ回路36は、電極1列分のデータレジスタを有しているの、この記憶されているデータに基づいてトランジスタを駆動するのが好適である。

【0096】表示する情報は、表示の速度と周期に合わせて外部から供給するか、あるいは、例えば、文字情報などのように、一定のパターンを有する情報については、ROM38bにそのパターンをあらかじめ記憶させておき、これをデータとしてもよい。また、通常のNTSC方式によるテレビジョン放送を表示する場合には、40

分離するとともに、映像信号を表示パネル48の画素数に対応したデジタル信号に変換する。マイクロコンピュータ38にこれらの信号を適宜同期させて供給することにより、テレビジョン放送を表示パネル48に表示することができる。

#### 【0097】

【発明の効果】叙上のとおり、この発明は分子内にカルコン様構造を有するクマリン誘導体の産業上有用な新規な特性の発見に基づくものである。この発明で用いるクマリン誘導体は、可視領域、とりわけ、赤色域又は近赤色域に発光極大を有し、ガラス状態において安定な薄膜を形成するので、有機EL素子用発光剤として極めて有用である。斯かる発光剤を用いるこの発明の有機EL素子は、発光効率と耐久性に優れているので、波長585nm以下の光を遮断するフィルターを組合せるか組合せることなく、赤色乃至橙色光又は白色光を発光する光源として照明一般における発光体や、例えば、画像情報や文字情報などの情報を視覚的に表示する多種多様の情報表示機器において極めて有利に用いることができる。

【0098】斯くも顕著な作用効果を奏するこの発明は、斯界に貢献すること誠に多大な、意義のある発明であると言える。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】この発明による有機EL素子の概略図である。

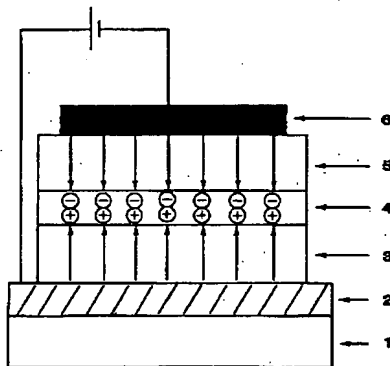
【図2】この発明による表示パネルの概略図である。

【図3】この発明による情報表示機器のブロックダイアグラムである。

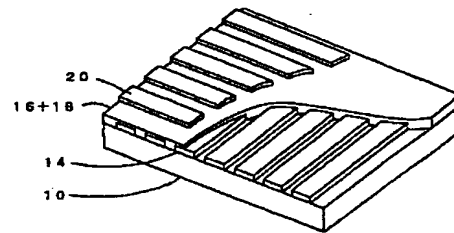
#### 【符号の説明】

1、10	基板
2、14	陽極
3、16	正孔注入／輸送層
4、18	発光層
5	電子注入／輸送層
6、20	陰極
30	直流電源
32、34	昇圧回路
36、46	ドライバ回路
38	マイクロコンピュータ
40	クロック発生回路
42、44	発振回路
48	表示パネル

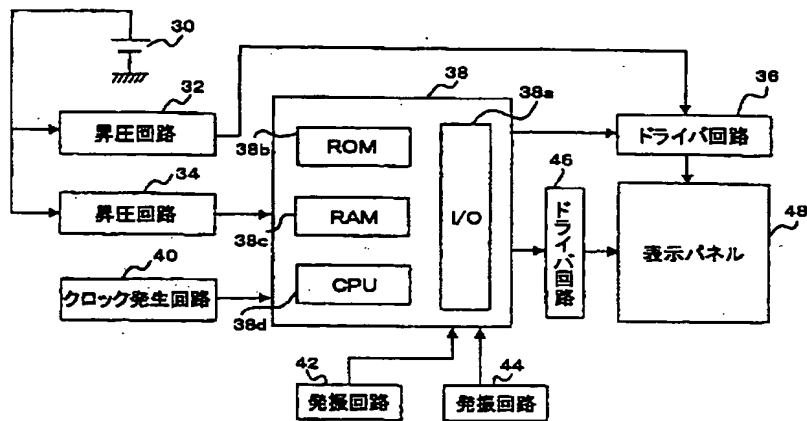
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

- (72)発明者 高橋 佳美  
岡山県岡山市下石井1丁目2番3号 株式会社林原生物化学研究所内
- (72)発明者 佐々木 千花  
岡山県岡山市下石井1丁目2番3号 株式会社林原生物化学研究所内
- (72)発明者 神宝 昭  
岡山県岡山市下石井1丁目2番3号 株式会社林原生物化学研究所内
- (72)発明者 菅 貞治  
岡山県岡山市下石井1丁目2番3号 株式会社林原生物化学研究所内

- (72)発明者 藤川 久喜  
愛知県愛知郡長久手町長湫字横道41番地の1 株式会社豊田中央研究所内
- (72)発明者 三浦 篤志  
愛知県愛知郡長久手町長湫字横道41番地の1 株式会社豊田中央研究所内
- (72)発明者 時任 静士  
愛知県愛知郡長久手町長湫字横道41番地の1 株式会社豊田中央研究所内
- (72)発明者 多賀 康訓  
愛知県愛知郡長久手町長湫字横道41番地の1 株式会社豊田中央研究所内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 BA06  
CA01 CB01 DA01 DB03 EB00



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**